

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-25398

(43)公開日 平成6年(1994)2月1日

(51)IntCl. ³	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C08C 84/06	NPT	9382-4J		

審査請求 未請求 請求項の数(全 5 頁)

(21)出願番号 特願平4-179783

(22)出願日 平成4年(1992)7月7日

(71)出願人 000215888

帝人化成株式会社

東京都港区西新橋1丁目6番21号

(72)発明者 竹本 英海

東京都港区西新橋1丁目6番21号 帝人化

成株式会社内

(72)発明者 徳田 俊正

東京都港区西新橋1丁目6番21号 帝人化

成株式会社内

(70)代理人 弁理士 前田 純博

(54)【発明の名称】 高屈折率低複屈折性ポリカーボネート樹脂

(57)【要約】

【目的】 ポリカーボネート樹脂の透明性を損なわず、高屈折率で且つ低複屈折性のポリカーボネート樹脂を提供する。

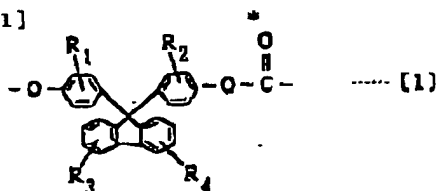
【構成】 9,9-ビス(4-オキシフェニレン)フルオレン構造単位を、41~95単位含有し、光弾性定数が 50×10^{-11} cm²/dyne以下で且つ比粘度が0.19以上である高屈折率定複屈折性ポリカーボネート樹脂。

(2)

特開平6-25398

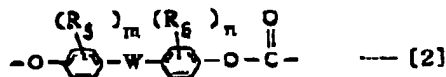
【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式〔1〕



〔式中R₁～R₄は水素原子、ハロゲン原子、フェニル基、炭素数1～3のアルキル基であって、同一又は異なっているもよい。〕で表される構成単位及び下記一般式〔2〕

〔化2〕



〔式中Wは単結合、アルキリデン基、シクロアルキリデン基、フェニル基置換アルキリデン基、スルホン基、スルフィド基又はオキシド基であり、R₅及びR₆は水素原子、ハロゲン原子、フェニル基、炭素数1～3のアルキル基であって、同一又は異なっているもよく、m及びnはそれぞれ1～4の整数である。〕で表される構成単位からなり、一般式〔1〕で表される構造単位を41～95モル%含有し、光弾性定数が50×10⁻¹² cm²/dyne以下で且つ0.7gを100mlの塩化メチレンに溶解し20℃で測定した比粘度が0.19以上である高屈折率、低複屈折性ポリカーボネート樹脂。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、屈折率及び複屈折の改善されたポリカーボネート樹脂に関する。更に詳しくは、特定量の9,9-ビス(4-オキシフェニレン)フルオレン構造単位を有する高屈折率、低複屈折性で且つ透明性に優れたポリカーボネート樹脂に関する。このような樹脂はその特性を生かしCDピックアップレンズ、フレネルレンズのような光学レンズ、プロジェクションテレビ用スクリーン、位相差フィルムのようなフィルム、ディスク用の素材として極めて有用なものである。

【0002】

【従来の技術】従来、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンにカーボネート前駆体物質を反応させて得られるポリカーボネート樹脂は透明性、耐熱性、機械

的性質、寸法安定性が優れているがゆえにエンジニアリングプラスチックとして多くの分野に広く使用されている。特に透明性に優れることから光学材料としての用途も多い。しかしながら、かかるポリカーボネート樹脂は光学材料としては複屈折が大きいという欠点を有している。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明者は、ポリカーボネート樹脂の透明性を損なわず高屈折率で且つ低複屈折性のポリカーボネート樹脂を提供することを目的とする。

【0004】本発明者は、この目的を達成せんとして鋭意検討を重ねた結果、9,9-ビス(4-オキシフェニレン)フルオレン構造単位を特定割合導入したポリカーボネート共重合体が上記目的を達成することを見出し、本発明に到達した。

【0005】9,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンにカーボネート前駆体を反応させて得られる芳香族ポリカーボネート樹脂は公知であり、このポリマーが高屈折率で耐熱性が良好なことも知られている。しかしながら、このホモポリマーを合成する際、溶剤に不溶のゲル状物が多量に生成し、溶剤可溶成分の収率は高々60～70%で実用性に乏しいものであった。また、このものを熔融成形しようとした場合、熔融粘度が高すぎて成形できないという問題があった。

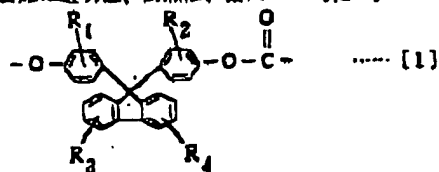
【0006】しかるに、9,9-ビス(4-オキシフェニレン)フルオレン構造単位を特定量共重合した芳香族ポリカーボネート樹脂が、このような欠点を有しないばかりか、高屈折率で低複屈折性を示すことは驚くべきことである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、下記一般式〔1〕

【0008】

〔化3〕



【0008】〔式中R₁～R₄は水素原子、ハロゲン原子、フェニル基、炭素数1～3のアルキル基であって、

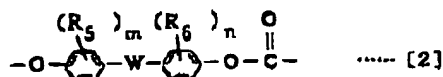
(3)

時間平6-25398

同一又は異なっている。] で表される構成単位及び下記一般式 [2]

[0010]

[化4]



【0011】 [式中Wは単結合、アルキリデン基、シクロアルキリデン基、フェニル基置換アルキリデン基、スルホン基、スルフィド基又はオキシド基であり、R₅ 及び R₆ は本素原子、ハロゲン原子、フェニル基、炭素数 1~3 のアルキル基であって、同一又は異なっている。] で表される構成単位からなり、一般式 [1] で表される構造単位を 41~95 モル% 含有し、光弾性定数が $50 \times 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{dyn}$ 以下で、且つ 0.7g を 100ml の塩化メチレンに溶解し 20℃ で測定した比粘度が 0.19 以上である高屈折率、低屈折率ポリカーボネート樹脂に係わるものである。

【0012】 本発明で対象とするポリカーボネート樹脂は、9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン類と一種以上の他の二価フェノール化合物類と末端停止剤及びカーボネート前駆体物質の反応によって製造される。通常ホスゲンを使用する界面電解法、又は炭酸ジエステルを使用するエステル交換反応によって製造される。

【0013】 9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン類としては、例えば 9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン、9, 9-ビス (3-メチル-4-ヒドロキシフェニル) フルオレン、9, 9-ビス (3-エチル-4-ヒドロキシフェニル) フルオレン等があげられ、特に 9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレンが好ましい。

【0014】 他の二価フェノールとしては例えばビス (4-ヒドロキシフェニル) メタン、2, 2-ビス (4-ヒドロキシフェニル) プロパン [通称ビスフェノール A]、2, 2-ビス (4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル) プロパン、4, 4-ビス (4-ヒドロキシフェニル) ヘプタン、2, 2-ビス (4-ヒドロキシ-3, 5-ジクロロフェニル) プロパン、2, 2-ビス (4-ヒドロキシ-9, 5-ジプロモフェニル) プロパン、ビス (4-ヒドロキシフェニル) オキサイド、ビス (3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル) オキサイド、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、3, 3'-ジクロロ-4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、ビス (4-ヒドロキシフェニル) スルホン、ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) スルホン、ビス (4-ヒドロキシフェニル) スルフィド、ビス (4-ヒドロキシフェニル) スルホキシド等があげられ、特にビスフェノール

ル A が好ましい。末端停止剤としては例えば p-tert-ブチルフェノールのような一価フェノールが使用される。使用量は使用する二価フェノールに対し、通常 0.01~10 モル%、好ましくは 0.03~8 モル% である。

【0015】 ホスゲンを使用する界面電解法反応では、通常炭酸結合剤の水溶液に 9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン類と他の二価フェノールを溶解し、有機溶媒の存在下に反応させる。炭酸結合剤としては例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属の水酸化物等が使用され、有機溶媒としては例えば塩化メチレン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素が使用される。反応は通常 0~40℃、好ましくは 20~30℃ で 10 分~10 時間程度で終了する。反応の進行に伴い反応系の pH を 10 以上に保持することが好ましい。また、反応を促進させるために触媒を用いてもよく、触媒としては例えばトリエチルアミン、テトラ-オ-ブチルアンモニウムブロマイド、テトラ-オ-ブチルホスホニウムブロマイドのような三級アミン、四級アンモニウム化合物、四級ホスホニウム化合物等があげられる。更に、必要に応じヘイドロサルファイトのような酸化防止剤を加えることもできる。

【0016】 炭酸ジエステルを使用するエステル交換反応では、不活性ガス雰囲気下 9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン類と他の二価フェノール化合物を炭酸ジエステルと加熱しながら攪拌して生成するアルコール又はフェノールを留出させることで行われる。反応温度は生成するアルコール又はフェノールの沸点等により異なるが、通常 120~550℃ の範囲である。反応後期には系を減圧にして生成するアルコール又はフェノールの留出を容易にさせて反応を完結させる。炭酸ジエステルとしては例えばジフェニルカーボネート、ジナフチルカーボネート、ビス (ジフェニル) カーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジブチルカーボネート等があげられる。これらのうち特にジフェニルカーボネートが好ましい。

【0017】 重合速度を速めるために重合触媒を使用することもでき、重合触媒としては水酸化ナトリウムや水酸化カリウム等のアルカリ金属及びアルカリ土類金属の水酸化物類、ホウ素やアルミニウムの水酸化物のアルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、第 4 級アンモニウム塩類、アルカリ金属及びアルカリ土類金属のアルコキシド類、アルカリ金属及びアルカリ土類金属の有機酸塩類、亜鉛化合物類、ホウ素化合物類、ケイ素化合物類、ゲルマニウム化合物類、有機スズ化合物、鉛化合物類、アンチモン化合物類、マンガン化合物類、チタン化合物類、ジルコニウム化合物類等の通常エステル化反応、エステル交換反応に使用される触媒を使用することができる。触媒は一種だけを用いても二種以上を組合わせて用いてもよい。これらの触媒の使用量は原料の二価フェノール

(4)

特開平6-25398

5

6~0.5重量%の範囲で選ばれる。

【0018】ポリカーボネート樹脂の分子量は、濃度0.7g/dlの塩化メチレン溶液にして20℃で測定した比粘度で表して0.19以上、好ましくは0.26~0.45のものである。0.19未満のものでは得られる成形品が脆くなるので適当でない。

【0019】本発明のポリカーボネート樹脂は、前記一般式【1】で表される構造単位と一般式【2】で表される構造単位の含有率が前者41~95モル%に対し後者59~5モル%である。一般式【1】で表される構造単位の含有率が41モル%未満では、複屈折が十分に低くならず、95モル%を超えると複屈折は著しく低減するが、透明性が悪くなる。

【0020】本発明のポリカーボネート樹脂には、必要に応じて例えばトリフェニルフェスファイト、トリス(ノニルフェニル)フェスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジフェスファイト、ジフェニルヘドロジエンフェスファイト、イルガノックス1076【ステアリル-β-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート】等のような安定剤、例えば2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-tert-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-4'-オクトキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン等のような耐熱剤、着色剤、帯電防止剤、彫型剤、滑剤等の添加剤を加えてもよい。また、本発明のポリカーボネート樹脂を成形するには射出成形、押出成形、熱プレス成形等任意の方法が採用されるが、透明性を高くするためには流延法で製膜する方法が最適である。以上のようにして得られる本発明のポリカーボネート樹脂は高屈折率、低複屈折性で且つ優れた透明性を示す。

【0021】

【実施例】以下に実施例をあげて本発明を更に説明する。なお、実施例中の部及び%は特に断らない限り重量部及び重量%である。また比粘度、全光線透過率、屈折率及び光弾性係数は下記の方法で測定した。

【0022】比粘度：ポリマー0.7gを100mlの塩化メチレンに溶解し、20℃で測定した。

全光線透過率：ASTM D-1003に準拠してH本藍色(株)製D80により測定した。

屈折率：アタゴ(株)製アッペ屈折計により波長598.3nmのD線を用いて25℃で測定した。

光弾性係数(複屈折性)：30mm×10mm×100μmのフィルムを用い、理研計器(株)製光弾性測定装置PA-150により測定した。

【0023】

【実施例1】9,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン21.5部、ビスフェノールA2.47部、

6

48.5%苛性ソーダ水溶液28.8部及び蒸留水361部を攪拌器付き反応器に仕込み溶解した。これに塩化メチレン162部を加え、混合溶液が20℃になるように冷却し、ホスゲン10.0部を40分で吹込んだ。その後反応液にtert-ブチルフェノール0.108部を塩化メチレンに溶解した溶液で加え、48.5%苛性ソーダ水溶液2.98部およびトリエチルアミン0.05部を加えて2時間攪拌を続けて反応を終了した。反応終了後反応液から下層のポリカーボネートの塩化メチレン溶液を分液し、この溶液を塩酸水溶液、蒸留水によって洗浄した後、塩化メチレンを蒸発除去させてポリカーボネートパウダーを得た。得られたパウダーの比粘度は0.850であった。このパウダーを塩化メチレンに溶解させてフィルムを製膜した。このものの全光線透過率は89%、屈折率は1.636、光弾性係数は $24 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$ であった。

【0024】

【実施例2】9,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンを19.0部及びビスフェノールAを4.11部使用する以外は実施例1と同様にしてパウダーを得た。このパウダーの比粘度は0.863であった。このパウダーを実施例1と同様に成形し評価したところ全光線透過率は89%、屈折率は1.631、光弾性係数は $80 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$ であった。

【0025】

【実施例3】8,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンを12.6部及びビスフェノールAを8.23部使用する以外は実施例1と同様にしてパウダーを得た。このパウダーの比粘度は0.755であった。このパウダーを実施例1と同様に成形し評価したところ全光線透過率は90%、屈折率は1.616、光弾性係数は $48 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$ であった。

【0026】

【比較例1】9,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンを2.63部及びビスフェノールAを14.8部使用する以外は実施例1と同様にしてパウダーを得た。このパウダーの比粘度は1.024であった。このパウダーを実施例1と同様に成形し評価したところ全光線透過率は90%、屈折率は1.592、光弾性係数は $74 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$ であった。

【0027】

【比較例2】比粘度が0.451のビスフェノールAがポリカーボネートパウダー【帯人化成(株)製パンライトL-1260】を実施例1と同様に成形し評価したところ全光線透過率は90%、屈折率は1.589、光弾性係数は $83 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$ であった。

【0028】

【発明の効果】本発明のポリカーボネート樹脂は高屈折率、低複屈折で且つ透明性にも優れるので光学レンズ、フィルム、ディスク等の高屈折率、低複屈折性、透明性

FROM SUGHRUE MION WASHINGTON DC

(FRI) 8. 9' 02 16:56/16:51/NO. 4260759153 P 12

(5)

特開平6-25398

7

を要求される各種光学用途に極めて有用である。

8

- 1 -

SPECIFICATION

POLYCARBONATE RESIN HAVING HIGH REFRACTIVE INDEX AND
LOW BIREFRINGENCE

5

[Abstract]

[Purpose]

To provide a polycarbonate resin having a high refractive index and a low birefringence without deteriorating the transparency of a polycarbonate resin.

10

[Constitution]

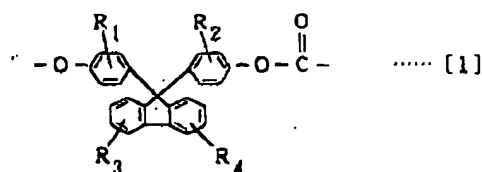
This polycarbonate resin having a high refractive index and a low birefringence, containing 9,9-bis(4-oxyphenylene)fluorene structure units in an amount of 41 to 95 percent by mole, and having a photoelastic constant of not more than 50×10^{-13} cm²/dyne and a specific viscosity of not less than 0.19.

15

[Claim]

1. A polycarbonate resin having a high refractive index and a low birefringence, comprising structural units represented by the following general formula [1]

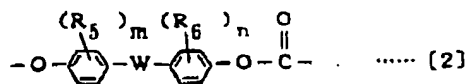
20



25

[wherein, R₁ to R₄ may be identical or different, and represent a hydrogen atom, a halogen atom, a phenyl group, or an alkyl group having 1 to 3 carbon atoms] and structural units represented by the following general formula [2]

30



- 2 -

[wherein, W represents a single bond, an alkylidene group, a cycloalkylidene group, a phenyl group-substituted alkylidene group, a sulfone group, a sulfide group or an oxide group; R₅ and R₆ may be identical or different, and represent a hydrogen atom, a halogen atom, a phenyl group, or an alkyl group having 1 to 3 carbon atoms; m and n each represents an integer of 1 to 4], containing the structural units represented by the general formula [1] in an amount of 41 to 95 percent by mole, and having a photoelastic constant of not more than 50×10^{-13} cm²/dyne and a specific viscosity of not less than 0.19 measured at 20°C, after 0.7 g of the polycarbonate resin is dissolved in 100 ml of methylene chloride.

[Detailed Description of the Invention]

[Utilization in Industry]

The present invention relates to a polycarbonate resin having an improved refractive index and an improved birefringence, or in more detail, to a polycarbonate resin having 9,9-bis(4-oxyphenylene)fluorene structural units in a specific amount, and having a high refractive index, a low birefringence and excellent transparency. Such the resin is extremely useful as a raw material for optical lenses such as CD pickup lenses and Fresnel lenses, screens for projection televisions, films such as phase difference films, and disks.

[Background Art]

A polycarbonate resin obtained by reacting 2,2-bis(4-hydroxyphenyl)propane with a carbonate precursor has been used in many fields as an engineering plastic, because of having excellent transparency, heat resistance, mechanical characteristics and dimensional stability. Especially, the polycarbonate resin has many uses as an optical material because of having excellent transparency. However, the polycarbonate resin has a difficult point that the birefringence of the resin is too large for employment as the optical material.

[Problems to be Solved by the Invention]

- 3 -

The object of the present invention is to provide the polycarbonate resin having the high refractive index and the low birefringence without deteriorating the transparency of the polycarbonate resin.

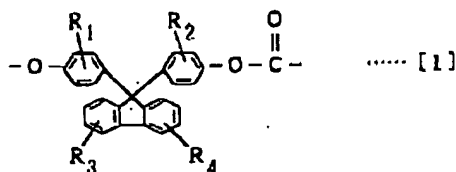
The inventors of the present invention have zealously made
5 studies to achieve the object, and have consequently discovered that a copolycarbonate into which 9,9-bis(4-oxyphenylene)fluorene structural units are introduced at a specific rate achieves the above-described object, thus having reaching the present invention.

An aromatic polycarbonate resin obtained by reacting 9,9-bis(4-
10 hydroxyphenyl)fluorene with a carbonate precursor has been known, and it has also been known that the polymer has a high refractive index and good heat resistance. However, on the synthesis of this homopolymer, a large amount of solvent-insoluble gel-like products were by-produced, and the yield of the solvent-soluble component was at most 60 to 70%.
15 Therefore, the practicality of the homopolymer was poor. There was also a problem that the homopolymer could not be melt-molded, because the melt-viscosity of the homopolymer was too high.

However, it is surprising that the aromatic polycarbonate resin copolymerized with a specific amount of the 9,9-bis(4-
20 oxyphenylene)fluorene structural units not only does not have such the defect but also exhibits the high refractive index and the low birefringence.

[Problems to be Solved by the Invention]

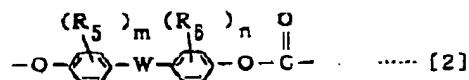
The present invention relates to the polycarbonate resin having
25 the high refractive index and the low birefringence, comprising structural units represented by the following general formula [1]



30 [wherein, R₁ to R₄ may be identical or different and represent a hydrogen atom, a halogen atom, a phenyl group, or an alkyl group having 1 to 3 carbon atoms] and structural units represented by the following general

- 4 -

formula [2]



5

[wherein, W represents a single bond, an alkylidene group, a cycloalkylidene group, a phenyl group-substituted alkylidene group, a sulfone group, a sulfide group or an oxide group; R₅ and R₆ may be identical or different and represent a hydrogen atom, a halogen atom, a phenyl group, or an alkyl group having 1 to 3 carbon atoms; m and n each represents an integer of 1 to 4], containing the structural units represented by the general formula [1] in an amount of 41 to 95 percent by mole, and having a photoelastic constant of not more than 50×10^{-13} cm²/dyne and a specific viscosity of not less than 0.19 measured at 20°C, after 0.7 g of the polycarbonate resin is dissolved in 100 ml of methylene chloride.

The polycarbonate resin targeted in the present invention is produced by the reaction of a 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene compound, one or more other dihydric phenol compounds, a terminating agent, and a carbonate precursor. The polycarbonate resin is usually produced by an interfacial polycondensation method using phosgene or by an ester interchange method using a carbonic diester.

The 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene compound includes 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene, 9,9-bis(3-methyl-4-hydroxyphenyl)fluorene, and 9,9-bis(3-ethyl-4-hydroxyphenyl)fluorene, and is especially preferably 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene.

The other dihydric phenol includes bis(4-hydroxyphenyl)methane, 2,2-bis(4-hydroxyphenyl)propane [alias bisphenol A], 2,2-bis(4-hydroxy-3-methylphenyl)propane, 4,4'-bis(4-hydroxyphenyl)heptane, 2,2-bis(4-hydroxy-3,5-dichlorophenyl)propane, 2,2-bis(4-hydroxy-3,5-dibromophenyl)propane, bis(4-hydroxyphenyl)oxide, bis(3,5-dichloro-4-hydroxyphenyl)oxide, 4,4'-dihydroxydiphenyl, 3,3'-dichloro-4,4'-dihydroxydiphenyl, bis(4-hydroxyphenyl)sulfone, bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)sulfone, bis(4-hydroxyphenyl)sulfide, and bis(4-

- 5 -

hydroxyphenyl)sulfoxide, and is especially preferably bisphenol A. The terminating agent includes a monohydric phenol such as p-tert-butylphenol. The terminating agent is used in an amount of usually 0.01 to 10 percent by mole, especially 0.03 to 8 percent by mole, based on the used dihydric phenol.

In the interfacial polycondensation reaction using the phosgene, the 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene compound and the one or more other dihydric phenol compounds are usually dissolved in the aqueous solution of an acid-bonding agent and then subjected to the interfacial polycondensation reaction in the presence of an organic solvent. The acid-bonding agent includes alkali metal hydroxides such as sodium hydroxide and potassium hydroxide, and the organic solvent includes halogenated hydrocarbons such as methylene chloride and chlorobenzene. The reaction finishes at usually 0 to 40°C, preferably 20 to 30°C, after about 10 minutes to 10 hours from the starting time. It is preferable to maintain the pH value of the reaction system to 10 or larger, as the reaction advances. A catalyst may be used to accelerate the reaction. The catalyst includes tertiary amines, quaternary ammonium compounds and quaternary phosphonium compounds, such as triethyl amine, tetra-n-butylammonium bromide, and tetra-n-butylphosphonium bromide. If necessary, an antioxidant such as hydrosulfite may further be added.

The ester interchange reaction using the carbonic diester is carried out by heating and stirring the 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene compound, the one or more other dihydric phenol compounds and the carbonic diester in the atmosphere of an inert gas, while distilling away the by-produced alcohol or phenol. The reaction temperature is usually ranged from 120 to 350°C, although depending on the boiling point of the by-produced alcohol or phenol. In the last term of the reaction, the pressure of the reaction system is reduced to easily distil away the by-produced alcohol or phenol, thereby completing the reaction. The carbonic diester includes diphenyl carbonate, dinaphthyl carbonate, bis(diphenyl)carbonate, dimethyl carbonate, diethyl carbonate, and dibutyl carbonate, and is especially preferably diphenyl carbonate.

A polymerization catalyst may be used to increase the

- 6 -

polymerization rate. The polymerization catalyst includes alkali metal and alkaline earth metal hydroxides such as sodium hydroxide and potassium hydroxide, the alkali metal salts, alkaline earth metal salts or quaternary ammonium salts of boron or aluminum hydroxide, the
5 alkoxides of alkali metals or alkaline earth metals, the organic acid salts of alkali metals or alkaline earth metals, zinc compounds, boron compounds, silicon compounds, germanium compounds, organic tin compounds, lead compounds, antimony compounds, manganese compounds, titanium compounds, and zirconium compounds which can usually be used for
10 esterification reactions or ester interchange reactions. Only one catalyst may be used, or a combination comprising two or more catalysts may also be used. The amount of the used catalyst or catalysts is selected from the range of 0.0001 to 1 percent by weight, preferably 0.0005 to 0.5 percent by weight.

15 The molecular weight of the polycarbonate resin is not less than 0.19, preferably 0.26 to 0.45, measured with a methylene chloride solution having a concentration of 0.7 g/dl at 20°C and represented by a specific viscosity. The polycarbonate resin having a molecular weight of less than 0.19 is not suitable, because of giving a brittle molded article.

20 The content of the structural units represented by the above-described general formula [1] and the content of the structural units represented by the above-described general formula [2] in the polycarbonate resin of the present invention are 41 to 95 percent by mole and 59 to 5 percent by mole, respectively. When the content of the
25 structural units represented by the general formula [1] is less than 41 percent by mole, the birefringence is sufficiently not lowered, and when the content of the structural units represented by the general formula [1] exceeds 95 percent by mole, the transparency is deteriorated.

The polycarbonate resin of the present invention may, if necessary,
30 contain additives such as a stabilizer, for example, triphenyl phosphite, tris(nonylphenyl)phosphite, distearyl pentaerythritol diphosphite, diphenylhydrogenphosphite, or Irganox 1076 [stearyl- β -(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionate], a weathering stabilizer, for example, 2-(2'-hydroxy-5'-methylphenyl)benzotriazole, 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-

. 7 .

amylphenyl)benzotriazole, 2-(2'-hydroxy-4'-octoxyphenyl)benzotriazole, or 2-hydroxy-4-octoxybenzophenone, a coloring agent, an antistatic agent, a mold release agent, and a lubricant. The polycarbonate resin of the present invention is formed by an arbitrary method such as an injection molding method, an extrusion molding method, or a heat press molding method, but a method for forming a film by a casting method is optimal for enhancing the transparency. The polycarbonate resin of the present invention, obtained as described above exhibits a high refractive index, a low birefringence and excellent transparency.

10

[Examples]

The following examples are given to further illustrate the present invention. Unless especially noted, parts and % in the examples mean parts by weight and percent by weight. In addition, the specific viscosity, the total light transmittance, the refractive index and the photoelastic coefficient were measured by the following methods.

15

The specific viscosity :

The specific viscosity was measured with 100 ml of a methylene chloride solution of 0.7g of the polymer at 20°C.

20

The total light transmittance :

The total light transmittance was measured with Σ 80 manufactured by Nippon Denshoku (Limited) according to ASTM D-1003.

The refractive index :

The refractive index was measured with Abbe refractometer manufactured by Atago (Limited), using D line having a wavelength of 598.3 nm at 25°C.

25

The photoelastic coefficient (birefringence) :

The photoelastic coefficient (birefringence) was measured with a photoelasticity measurer PA-150 manufactured by Riken Keiki (Limited), using a film of 30 mm \times 10 mm \times 100 μ m.

30

[Example 1]

21.5 Parts of 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene, 2.47 parts of bisphenol A, 23.8 parts of a 48.5% aqueous sodium hydroxide solution, and

- 8 -

361 parts of distilled water were placed in a reactor with a stirrer and then dissolved. The solution was mixed with 162 parts of methylene chloride and cooled down to 20°C. 10.0 Parts of phosgene was blown in the cooled solution during 40 minutes. The reaction solution was mixed with a methylene chloride solution of 0.108 part of p-tert-butylphenol, 2.98 parts of a 48.5% aqueous sodium hydroxide solution and 0.05 part of triethylamine, and stirred for two hours to finish the reaction. After the reaction was finished, the polycarbonate methylene carbonate solution as a lower layer was separated from the reaction solution, washed with an aqueous hydrochloric acid solution and distilled water, followed by distilling away the methylene chloride to leave the polycarbonate powder. The obtained powder had a specific viscosity of 0.850. The powder was dissolved in methylene chloride and used to produce a film. The film had a total light transmittance of 89%, a refractive index of 1.636, and a photoelastic coefficient of $24 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$.

[Example 2]

The powder was obtained similarly as in Example 1 except that 19.0 parts of the 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene and 4.11 parts of the bisphenol A were used. The powder had a specific viscosity of 0.863. When the powder was formed and evaluated similarly as in Example 1, the obtained film had a total light transmittance of 89%, a refractive index of 1.631 and a photoelastic coefficient of $30 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$.

[Example 3]

The powder was obtained similarly as in Example 1 except that 12.6 parts of the 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene and 8.23 parts of the bisphenol A were used. The powder had a specific viscosity of 0.755. When the powder was formed and evaluated similarly as in Example 1, the obtained film had a total light transmittance of 90%, a refractive index of 1.616 and a photoelastic coefficient of $48 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dyne}$.

[Comparative Example 1]

The powder was obtained similarly as in Example 1 except that

- 9 -

2.53 parts of the 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluorene and 14.8 parts of the bisphenol A were used. The powder had a specific viscosity of 1.024. When the powder was formed and evaluated similarly as in Example 1, the obtained film had a total light transmittance of 90%, a refractive index of 1.592 and a photoelastic coefficient of 74×10^{-13} cm²/dyne.

[Comparative Example 2]

When bisphenol A polycarbonate powder [Panlite L-1250 produced by Teijin Kasei (Limited)] having a specific viscosity of 0.451 was formed and evaluated similarly as in Example 1, the obtained film had a total light transmittance of 90%, a refractive index of 1.589 and a photoelastic coefficient of 83×10^{-13} cm²/dyne.

[Effect of Invention]

The polycarbonate resin of the present invention is extremely useful for various optical uses requiring high refractive index, low birefringence and excellent transparency, such as optical lenses, films and disks, because of having the high refractive index, the low birefringence and the excellent transparency.

20

CERTIFICATION OF FACSIMILE TRANSMISSION

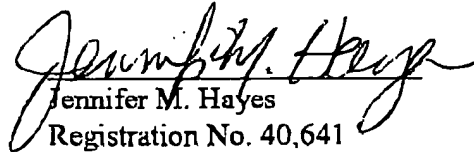
Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

I hereby certify that the following are being facsimile transmitted to Ms. Karen Creasey
at the Patent and Trademark Office at (703) 308-6916 on August 9, 2002;

1. Petition to Withdraw From Issue and authorization to the fee in the amount of \$ 130.00 to deposit account;
2. Request for Continued Examination (authorization to charge the fee in the amount of \$ 740.00 to deposit account); and
3. Information Disclosure Statement (with a copy of JP-A-6-25398 and full English translation and PTO/SB/08 A & B (modified) (substitute for PTO Form 1449)).

Respectfully submitted,


Jennifer M. Hayes
Registration No. 40,641

SUGHRUE MION, PLLC
2100 Pennsylvania Avenue, N.W.
Washington, D.C. 20037-3213
Telephone: (202) 293-7060
Facsimile: (202) 293-7860
Date: August 9, 2002